

## 水素吸蔵合金の充填状態の計算 (離散要素法による接触距離変更モデル)

松下政裕<sup>\*1</sup>, 門出政則<sup>\*1</sup>, 光武雄<sup>\*2</sup>

### Analysis of Metal Hydride Packed-Bed (Contact Diameter Change Model by Discrete Element Method)

Masahiro MATSUSHITA<sup>\*1</sup>, Masanori MONDE and Yuichi MITSUTAKE

<sup>\*1</sup> Institute of Ocean Energy, Saga University  
Honjo-machi 1, Saga, 840-8502 Japan

We analyzed the metal hydride packed-bed by discrete element method (DEM). Some analyses carried out by Rosin-Rammler distribution particles. In order to simulate the void fraction beyond 60% obtained by experiment, we are trying to develop van der Waals force model and contact diameter change model. Simulation results were close to the experimental results by using intermediate contact diameter between the circumscribed circle diameter and the mean area diameter.

**Key Words** : Atomization, Discrete element method, Energy storage, Hydrogen energy, Metal hydride, Packed bed,

#### 1. 緒 言

水素吸蔵合金を使用した水素貯蔵方法は、安全性を重視した用途で有望視されている。今後、水素吸蔵合金を実用普及していくためには、設計計算などに使用できる基本的な特性を詳細に調べることが必要である<sup>(1)</sup>。特に、伝熱特性を算出する上で、粉体層の充填状態を正しく評価することが必要である。そこで、著者らは、これまで水素吸蔵合金が水素を吸蔵放出する際の充填層を直接可視化する実験<sup>(2)-(4)</sup>を行い、空隙率の変化を詳細に調べた。さらに、その実験結果から空隙率の実験式<sup>(5)</sup>を構築し、水素吸蔵合金の有効熱伝導率の計算<sup>(6)</sup>を行った。可視化実験の結果では、水素吸蔵合金の充填層は、水素吸蔵放出を繰り返すことで、粒子が崩壊し、高密度には充填できない粒子層になることが分かった。従って、この充填層の膨張、収縮、崩壊を含めて、充填状態を解析によって算出することも必要である。

そこで、前報<sup>(7)</sup>では、離散要素法<sup>(8),(9)</sup> (Discrete element method, DEM) を使用し、水素吸蔵合金の充填状態の解析結果について報告した。結果は、粒子を球形として扱った場合、実験に基づく粒子径分布だけを与えて計算しても、実験とは異なる空隙率となった。さらに、粒子間のファンデルワールス力を重力との比として与えるモデルを構築し、実際より大きな粒子の解析においても付着力の影響を考慮できるような解析を行った。しかし、付着力のみの影響では実験で得られたような大きな空隙率の解析結果を得ることはできなかった。さらに、外接円径と面積相当径を使用して、粒子間の接触距離を個別に与えるモデルを構築し、大きな空隙率の解析結果になることを確認した。

本論文では、前報で示した粒子間の接触距離を変えるモデルを改良し、可視化実験で得られた 60%を超えるような大きな空隙率の充填状態を計算するための解析方法の検討を行ったので、その結果を報告する。解析は、離散要素法 (DEM) を使用し、実験から得られた粒子径分布を使用して行った。粒子間の接触距離は、(1) すべての粒子に一定値を与える方法、(2) 乱数により各粒子に一定値を与える方法、(3) 粒子間接触ごとに乱数によ

\* 原稿受付 2013 年 7 月 31 日

<sup>\*1</sup> 佐賀大学 海洋エネルギー研究センター (〒840-8502 佐賀県佐賀市本庄町 1)

<sup>\*2</sup> 佐賀大学大学院 工学系研究科 機械システム専攻

E-mail: matusita@ioes.saga-u.ac.jp

て個別に与える方法の3種類の方法で設定し、水素吸蔵合金の充填状態の解析を行った。解析結果は、可視化実験で得られ充填状態と比較して報告を行う。

## 2. 離散要素法シミュレーション

### 2・1 基礎式および座標系

離散要素法（DEM）では、個々の粒子間の接触力を図1に示すようなフォークトモデルで表現する。離散要素法における力とモーメントの基礎式を以下に示す。

$$F = m \frac{d^2 u}{dt^2} = -\eta \frac{du}{dt} - Ku + F_g \quad (1)$$

$$M = I \frac{d^2 \psi}{dt^2} = -\eta r^2 \frac{d\psi}{dt} - Kr^2 \psi \quad (2)$$

ここで、 $m$ は粒子の質量、 $u$ は並進変位、 $\eta$ はダッシュポット粘性係数、 $K$ はバネ弾性定数、 $F_g$ は重力、 $I$ は慣性モーメント、 $\psi$ は回転変位、 $r$ は粒子半径である。解析方法の詳細は前報<sup>(7)</sup>で報告しているので、ここでは省略する。

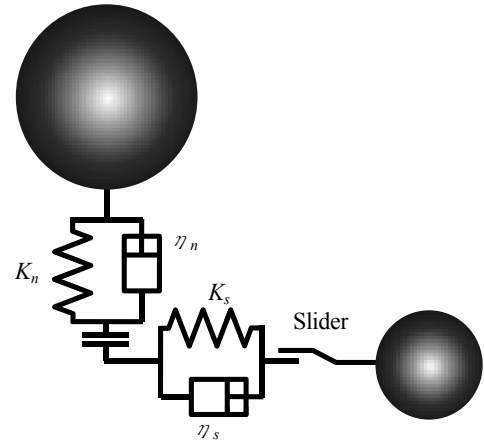


Fig.1 Voigt model

### 2・2 計算条件

計算は水素吸蔵合金（ $\text{LaNi}_5$ ）の可視化実験結果<sup>(3)-(5)</sup>に合わせた条件で行った。容器は内径φ27 mmの円筒型のガラス瓶であり、水素吸蔵合金の充填量は50 gである。実際の粒子では数十億個の粒子となり解析は困難であるため、粒子倍率200倍の大きな粒子として解析を行った。表1に解析を行った粒子の設定値を示す。粒子径分布は実験結果をもとにRosin-Rammler分布で近似した分布を与えている。水素吸蔵放出を5, 10, 50回繰り返した時の粒子径分布に対し解析を行った。なお、実験結果では粒子径分布は15回の繰り返し以降はほとんど変化していないので、50回の結果（RR-50）が15回以降の結果であると考えている。Rosin-Rammler分布は以下の式で表される。

$$Q = 1 - \exp \left\{ - \left( \frac{D}{D_e} \right)^n \right\} \quad (3)$$

また、ヤング率、ポアソン比、摩擦係数が入力値として必要であるが、水素吸蔵合金  $\text{LaNi}_5$  の物性値は入手できなかったため、ニッケルの値及び摩擦に関してはニッケルとガラスの値を使用した。表2に使用した値を示す。

### 2・3 付着力モデル

前報と同様に、粒子間付着力としてファンデルワールス力を考慮するモデルを導入した。ここでは、大きな粒子径として計算しているため、重力との比として係数を与えるモデルを使用した。

Table 2 Setting value

	Nickel	Glass
Young's modulus	$2.0 \times 10^{11} \text{ Pa}$	$6.0 \times 10^{10} \text{ Pa}$
Poisson's ratio	0.3	0.23
Friction coefficient Nickel	0.7	0.7

Table 1 Calculation particles

Name	Cycle number	$De$	$n$	Time	Number	Mean number diameter	Minimum diameter	Maximum diameter	Mean Wardell's sphericity
RR-05	5	12.99	1.25	200	310	2.323 mm	0.050 mm	7.350 mm	0.739
RR-10	10	9.93	1.25	200	571	1.858 mm	0.050 mm	6.750 mm	0.732
RR-50	50	8.03	1.25	200	1,002	1.525 mm	0.050 mm	6.150 mm	0.730

$$F_{vw} = C_{vw}F_g \quad (4)$$

ここで、 $F_{vw}$ ：ファンデルワールス力、 $C_{vw}$ ：重力比係数、 $F_g$ ：重力である。

前報の結果として、付着力モデルの導入だけでは実験結果のような大きな空隙率の結果は得られなかった。また、係数  $C_{vw}$  をいくつにすることがふさわしいかもわかっていない。今回は、付着力なし ( $C_{vw}=0$ )、付着力あり ( $C_{vw}=10^{-5}$ ) の2種類の設定での解析を行った。

#### 2・4 接触距離変更モデル

実験結果のような大きな空隙率となるような計算結果を得るためには、複雑な粒子形状の粒子に対する計算が必要である。しかし、そのような計算は、計算時間が膨大になり現実的ではない。そこで、基本的には粒子を球形として扱い、主な計算は面積相当径  $R_A$  を使用し、粒子間の接触に関する計算では、外接円径  $R_C$  と面積相当径  $R_A$  の中間的な接触距離  $R_B$  を設定し、計算を行うモデルを使用した。外接円径は、実験から得られたワーデルの球形度  $\psi_w$  をもとに設定した。ワーデルの球形度は以下の式で表される。

$$\psi_w = \frac{R_A}{R_C} \quad (5)$$

前述の表1には実験で得られたワーデル球形度の平均値も示している。

接触距離  $R_B$  の設定方法は、(1) すべての粒子に一定値を与える方法、(2) 乱数により各粒子に一定値を与える方法、(3) 粒子間接触ごとに乱数によって個別に与える方法の3種類を使用した。

$$R_B = R_A + C_r \times (R_C - R_A) \quad (6)$$

ここで、 $C_r$  は接触距離係数であり、 $C_r=1.0$  のとき、粒子は外接円径で接触し、 $C_r=0.0$  のとき、粒子は面積相当径で接触することを意味する。

図2、3が乱数設定した場合の接触距離係数  $C_r$  の一例である。図2は、(2) 乱数により各粒子に一定値を与える方法で、各粒子は乱数で設定された一定の接触距離で常に他の粒子と接触しているとした場合の粒子の接触距離係数の例を表しており、プロットの数には粒子数である。図3は、(3) 粒子間接触ごとに乱数によって個別に与える方法で、個々の粒子間接触でそれぞれ粒子間の接触距離を乱数によって設定している場合の接触距離係数の例を表しており、プロットの数には接触数である。当初、粒子間の接触が生じるごとに、乱数によって接触距離の設定を行っていた。しかし、その場合、小さな接触距離が設定されると、粒子が接触なくなることが多く、結果的に、次第に大きな接触距離に偏っていく解析結果になった。従って、現在はすべての粒子間の接触距離を最初に乱数で決定し、その値を使用している。乱数を使用した場合の接触距離係数の平均値は、図2では  $\bar{C}_r=0.48$ 、図3では  $\bar{C}_r=0.51$  となっており、約0.5でほぼ均一に分布するように設定できている。

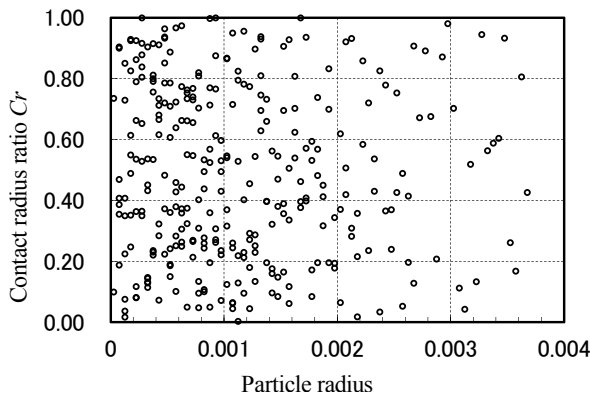


Fig.2 Contact radius ratio by random number (2)

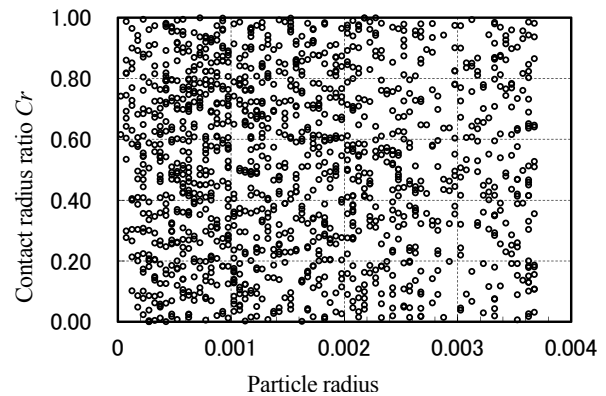


Fig.3 Contact radius ratio by random number (3)

### 3. 計算結果

#### 3・1 接触距離一定での計算結果

まず, 接触距離  $R_b$  を一定値とした場合の解析結果を示す. 図4はワーデル球形度を変えて, 常に外接円径で接触するとした場合 ( $Cr=1.0$ ) の粒子の充填状態を表している. 図では, 明確に粒子径分布がわかるように粒子径の違いで粒子を色分けしている. 結果は, どの粒子径分布においてもワーデル球形度の変化に対し, ほぼ線形に体積が変化している. つまり, 接触距離を変えることによって, 直接的に解析結果の空隙率を変えることができる. 従って, 複雑な粒子形状を適切に表現できるような接触距離を与えれば, 実験結果と同じ空隙率の解析結果が得られるとみられる.

図5は, 50 サイクルの解析結果で, 接触距離係数と空隙率の関係を示している. 横軸はワーデル球形度を実験結果の 0.73 とした場合の  $Cr$  の値を表している. 図には, 実験結果として, 初期空隙率  $\varepsilon_0$ , 最大吸蔵時空隙率  $\varepsilon_1$ , 水素放出後空隙率  $\varepsilon_2$  も示している. 外接円径と面積相当径の中間値 ( $Cr=0.5$ ) とした場合に, 実験で得られた空隙率と等しくなると期待したが, 解析結果の空隙率は 70.4% で, 実験結果よりも少し大きな空隙率となった.

図6は, サイクル数に対する空隙率変化を示しており, 実験結果との比較を表している. 実験結果はタップ充填による充填限界も示している. 解析結果は, 丸が  $Cr=0.5$ , 四角が  $Cr=0.0$  の結果で, 白抜きが付着力なし, 塗りつぶしが付着力ありの結果を表している. ワーデル球形度は, それぞれのサイクルでの実験値を使用した. 結果は, 接触距離を, 面積相当径とした場

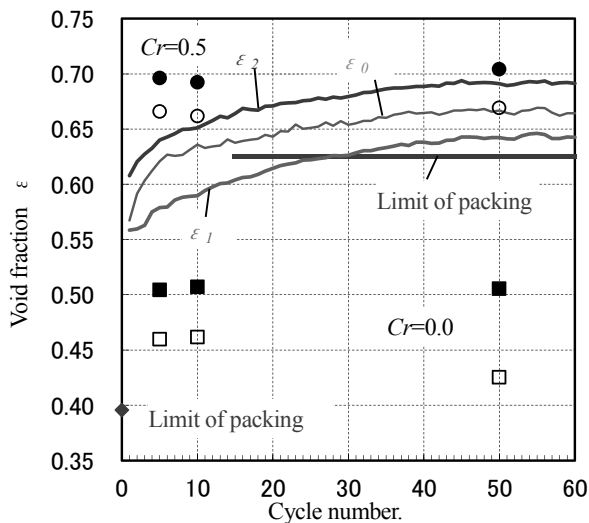
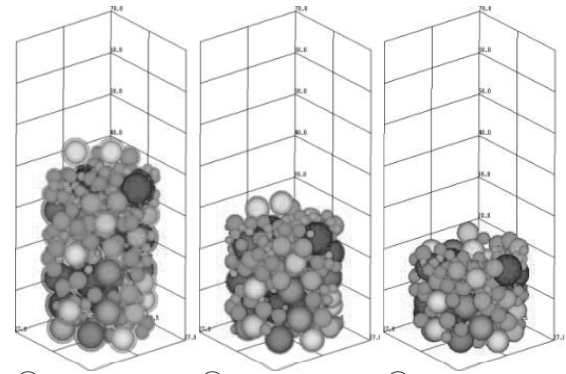
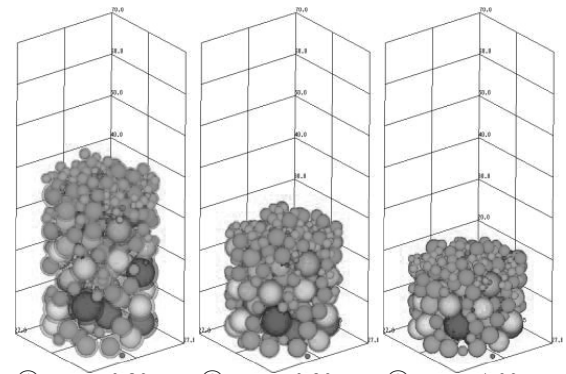


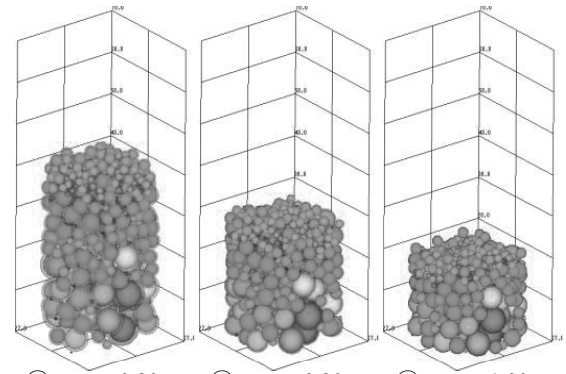
Fig.6 Transition of void fraction.



①  $\phi_w = 0.80$  ②  $\phi_w = 0.90$  ③  $\phi_w = 1.00$   
(a) RR-05,  $Cr = 1.0$ ,  $Cvw = 1.0 \times 10^5$



①  $\phi_w = 0.80$  ②  $\phi_w = 0.90$  ③  $\phi_w = 1.00$   
(b) RR-10,  $Cr = 1.0$ ,  $Cvw = 1.0 \times 10^5$



①  $\phi_w = 0.80$  ②  $\phi_w = 0.90$  ③  $\phi_w = 1.00$   
(c) RR-50,  $Cr = 1.0$ ,  $Cvw = 1.0 \times 10^5$

Fig.4 Calculation results of contact radius change model for various Wardell's sphericity

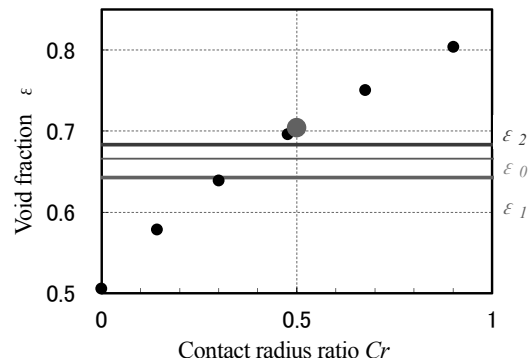


Fig.5 Transition of void fraction. (RR-50)

合 ( $Cr=0.0$ ) に比べ、外接円径と面積相当径の中間値 ( $Cr=0.5$ ) とすることで、実験結果のような大きな空隙率の解析が行えるようになってきている。特に、50 サイクルの粒子径分布の解析結果は実験結果に近い解析結果が得られている。しかし、さらに実験結果と合うような解析を行うためには、付着力や粒子径分布による影響や設定値についてさらに検討する必要がある。また、今回の解析では、粒子の倍率設定が 200 倍と大きく、比較的粒子数が少ない解析になっていることも結果に影響していると考えられる。従って、粒子倍率を下げ、粒子数が多い場合の解析を行う必要もある。

### 3・2 接触距離の設定方法による違い

図 7 に 3 種類の接触距離の設定方法による解析結果の比較を示す。図 7 は、5 サイクルの粒子径分布 (RR-05) に対する結果で、どの計算もワーデル球形状は実験結果の 0.739 を使用している。図 7 (1a) は、一定値  $Cr=0.5$  として付着力あり、図 7 (1b) は一定値  $Cr=0.5$  として付着力なしの結果を示している。図 7 (2) は、乱数により各粒子に一定値を与える方法、図 7 (3) は、粒子間接触ごとに乱数によって個別に与える方法の解析結果を示している。乱数使用の方法ではどちらも付着力ありのみの解析結果である。充填状態を見る限り、付着力の有無による影響はみられるが、接触距離の設定方法の違いによる解析結果への影響は明確にはみられていない。

図 8 に、それぞれの解析の空隙率の比較を示す。まだ、計算は 1 回ずつであるため、乱数の使用により結果がどの程度の範囲にひろがるかなどは不明である。計算時間は、乱数を使用した場合の方が少し長くなる。結果はどの解析結果も実験より少し大きな空隙率になっている。接触距離の設定方式は違っても、接触距離係数の平均が同じであれば、解析結果は同じような空隙率となった。

## 4. ま と め

本報告は、離散要素法 (Distinct element method, DEM) を使用し、水素吸蔵合金の充填状態の解析を行った。接触距離を変更できるモデルを構築し、解析結果と実験結果との比較を行った。接触距離は、(1) すべての粒子に一定値を与える方法、(2) 乱数により各粒子に一定値を与える方法、(3) 粒子間接触ごとに乱数によって個別に与える方法の 3 種類の方法で設定し、解析を行った。結果は、接触距離係数 0.5 の一定値としても、乱数によ

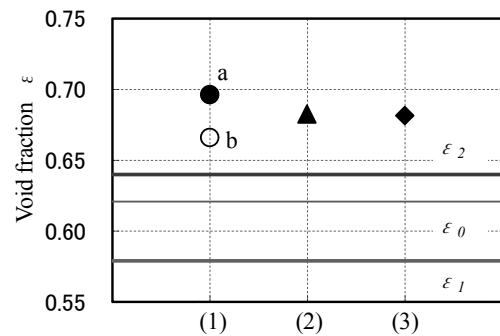
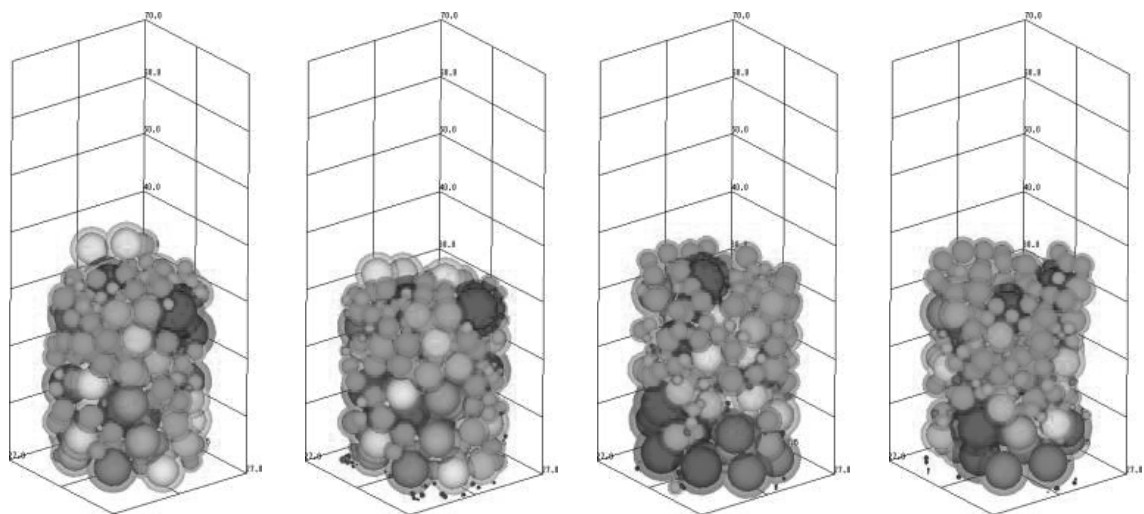


Fig.8 Comparison of void fraction ( RR-05 )



(1a)  $Cr=0.5$ ,  $Cvw=1.0 \times 10^5$  (1b)  $Cr=0.5$ ,  $Cvw=0.0$  (2)  $\bar{Cr}=0.48$ ,  $Cvw=1.0 \times 10^5$  (3)  $\bar{Cr}=0.51$ ,  $Cvw=1.0 \times 10^5$

Fig.7 Calculation results of contact radius change model ( RR-05 )

て接触距離係数の平均値が 0.5 となるようにしても, 同じような空隙率となった. 接触距離の設定方法が異なっても, ワーデルの球形度による外接円径と面積相当径の中間値を接触距離とすることで, 実験で得られた充填状態に近い空隙率の計算結果が得られる. ただし, さらに実験結果と合うような計算結果を得るためには, 付着力や粒子径分布による影響, 乱数による影響や設定値についてさらに検討する必要がある. また, 今回の解析は比較的粒子数が少ない条件で行ったため, 粒子数を増やした場合に結果が影響を受ける可能性もある. 今後は, 実際の粒子層に近づけるため, できるだけ多くの粒子での計算を行う予定である. また, タップ充填を行った時の解析も実行できるように改良する予定である. 同時に, 計算時間短縮のため, プログラムを改善する. その上で, ファンデルワールス力モデルと粒子間接触距離変更モデルを改良し, 様々な条件での解析を行って, 実験結果に近い充填状態を計算できるような解析方法の研究を進めていく.

## 文 献

- (1) Murthy, S.S., “Heat and mass transfer in solid state hydrogen storage: A review”, *Journal of Heat Transfer*, Vol.134 (2012), pp.031020-0312030.
- (2) 松下政裕, 門出政則, 光武雄一, “水素吸蔵合金の膨張・収縮の可視化試験装置”, 佐賀大学海洋エネルギー研究センター報告 OTEC, No. 15 (2010), pp. 37-40.
- (3) 松下政裕, 門出政則, 光武雄一, “水素吸蔵放出による水素吸蔵合金の体積変化の可視化計測”, 佐賀大学海洋エネルギー研究センター報告 OTEC, No. 16 (2011), pp. 77-84.
- (4) 松下政裕, 門出政則, 光武雄一, “水素吸蔵合金の粒子崩壊による充填状態の変化に関する研究”, 日本機械学会論文集 B 編, Vol. 78, No. 794 (2012), pp. 1810-1821.
- (5) Matsusita, M., Monde, M. and Mitsutake, Y., “Experimental formula for estimating porosity in a metal hydride packed bed” *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.38 (2013), pp. 7056-7064.
- (6) 松下政裕, 門出政則, 光武雄一, “水素吸蔵合金の有効熱伝導率の計算”, 日本機械学会論文集 B 編, (投稿中掲載決定済).
- (7) 松下政裕, 門出政則, 光武雄一, “離散要素法による水素吸蔵合金の充填状態計算”, 佐賀大学海洋エネルギー研究センター報告 OTEC, No. 17 (2012), pp. 47-55.
- (8) 粉体工学会編, 粉体工学叢書 第7巻 粉体層の操作とシミュレーション, (2009), 日刊工業新聞社.
- (9) 粉体工学会編, 粉体シミュレーション入門, (1998), 産業図書株式会社.